

KOREAN PATENT ABSTRACTS XML 1(1-1)

Save

[Please Click here to view the drawing](#)

Korean FullDoc

(19) **KOREAN INTELLECTUAL PROPERTY OFFICE**

KOREAN PATENT ABSTRACTS

(11)Publication number: **1020020091780** **A**

(43)Date of publication of application:
06.12.2002

(21)Application number: **1020020025519**

(71)Applicant: **TDK CORPORATION**

(22)Date of filing: **09.05.2002**

(72)Inventor: **AKACHI YOSHIKI
KOBUE HISASHI
TAKAYA MINORU
UEMATSU HIROYUKI**

(51)Int. Cl **C30B 13/16**

(54) METHOD FOR MANUFACTURING SINGLE CRYSTAL CERAMIC POWDER, AND SINGLE CRYSTAL CERAMIC POWDER, COMPOSITE MATERIAL, AND ELECTRONIC ELEMENT

(57) Abstract:



PURPOSE: A method for manufacturing single crystal ceramic powder is to provide excellent characteristics, and single crystal ceramic powder, composite material and electronic elements using the single crystal ceramic powder. CONSTITUTION: A method for manufacturing single crystal ceramic powder, the method comprises a powder supply step for supplying powder consisting essentially of ceramic ingredients to a heat treatment area with a carrier gas, a heat treatment step for heating the powder supplied to the heat treatment area at temperatures above a melting point of the powder to form a product, and a cooling step for cooling the product obtained in the heat treatment step to form single crystal ceramic powder.

(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(51) Int. Cl.⁷
C30B 13/16

(11) 공개번호 특2002-0091780
(43) 공개일자 2002년12월06일

(21) 출원번호 10-2002-0025519
(22) 출원일자 2002년05월09일
(30) 우선권주장 JP-P-2001-00165931 2001년05월31일 일본(JP)
(71) 출원인 티디케이가부시카가이샤
(72) 발명자 일본 도쿄도 추오구 니혼바시 1조메 13반 1고 다카미치노루
일본도쿄도추오구니혼바시1조메13반1고티디케이가부시카가이샤내
아카치요시아키
일본도쿄도추오구니혼바시1조메13반1고티디케이가부시카가이샤내
우에마츠히로유키
일본도쿄도추오구니혼바시1조메13반1고티디케이가부시카가이샤내
고부케히사시
일본도쿄도추오구니혼바시1조메13반1고티디케이가부시카가이샤내
(74) 대리인 김영호

심사청구 있음

(54) 단결정 세라믹스 분말의 제조방법, 단결정 세라믹스 분말 및 복합재료, 전자부품

요약

종래에 존재하지 않았던 신규한 세라믹스 미립자를 제공한다.

세라믹스 성분으로 이루어지는 분체를 캐리어 가스와 함께 가열처리 영역에 공급하는 분체 공급 공정과, 상기 가열처리 영역에 공급된 상기 분체를 단결정화하는데 필요한 온도까지 가열하는 가열처리 공정과, 상기 가열처리 공정에서 얻어진 생성물을 냉각함으로써 단결정 세라믹스 분말을 얻는 냉각 공정을 구비하는 세라믹스 분말의 제조방법이다. 이 제조방법에 의해 구형도가 0.9 이상으로 입자직경이 작은 세라믹스 분말을 얻을 수 있다.

도면

도1

도2

도면의 간단한 설명

- 도 1은 세라믹스 분말의 제조공정 개략의 일례를 나타내는 설명도,
- 도 2는 실시예 1에 의해 얻어진 세라믹스 분말의 X선 회절 결과를 나타내는 차트,
- 도 3은 실시예 1에 의해 얻어진 세라믹스 분말의 SEM 상을 나타내는 사진,
- 도 4는 실시예 1에 의해 얻어진 세라믹스 분말의 전자선 회절 상을 나타내는 사진,
- 도 5는 비교예 1에 의해 얻어진 세라믹스 분말의 SEM 상을 나타내는 사진,
- 도 6은 비교예 1에 의해 얻어진 세라믹스 분말의 전자선 회절 상을 나타내는 사진,
- 도 7은 실시예 4에 의해 얻어진 세라믹스 분말의 SEM 상을 나타내는 사진,
- 도 8은 실시예 4에 의해 얻어진 세라믹스 분말의 자기특성을 나타내는 그래프,
- 도 9는 비교예 2에 의해 얻어진 세라믹스 분말의 자기특성을 나타내는 그래프,
- 도 10은 실시예 4 및 비교예 2에 의해 얻어진 세라믹스 분말을 사용하여 형성된 기판의 투과율을 나타내는 그래프.

- 도 11은 본 발명이 적용되는 고주파 모터를 나타내는 투시사시도.
 도 12는 본 발명이 적용되는 챔 코일을 나타내는 투시사시도.
 도 13은 실시예 6에 따른 복합자성재료의 인덕턴스 값 L의 변화율을 나타내는 그래프 및
 도 14는 비교예 4에 따른 자성재료의 인덕턴스 값 L의 변화율을 나타내는 그래프이다.

발명의 상세한 설명

발명의 목적

발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술

본 발명은 단결정 세라믹스 분말 및 그 제조방법에 관한 것이다.

종래 유전체 분말이나 자성 페라이트 분말 등의 세라믹스 분말이 많은 분야에서 사용되고 있다. 예를 들면 유전체 분말로서 티탄산바륨이나 산화티탄 등은 유전성, 압전성 및 초전성이 우수하고, 자기 콘덴서나 필터, 센서 등의 재료로서 사용되고 있다.

세라믹스 분말을 자기 컨덴서용의 재료로서 사용하는 경우, 유전율이 높고, 손실이 작은 것이 요구된다. 또한 자성 페라이트 재료로서 사용하는 경우는 손실이 작고, 투자율이 균일하게 고주파 영역까지 신장되어 있는 것이 요구된다. 이들 특성은 세라믹스 분말의 형상, 입자직경, 순도, 반응성 등의 특성에 의존한다. 예를 들어, 세라믹스 분말이 다결정이나 비정형의 분말이면 국부적 이상 입자 성장을 일으키거나 조성의 불균일을 발생하기 쉬워지고, 자기적 특성이나 전기적 특성의 열화를 초래하게 된다. 따라서 세라믹스 분말은 결정입자계나 불순물을 갖지 않고 단상이고, 또한 단결정인 것이 바람직하다. 또한, 더욱 우수한 특성을 얻기 위해 세라믹스 분말은 2종류 이상의 금속과 산소의 화합물인 것이 바람직하다.

그러나, 우수한 특성을 갖는 세라믹스 분말은 제조하는 것이 곤란하다. 예를 들어 고체상 반응법에서는 최종 생성물의 조성에 대응한 금속 산화물의 혼합 분말을 공기중이나 불활성가스 중에서 소성함으로써 2종류 이상의 금속과 산소의 화합물인 금속 산화물의 유전체를 얻을 수 있지만, 단상의 분말을 얻는 것이 곤란하다. 또한, 공동침전법(coprecipitation) 등의 액상법에서는 금속염의 수용액, 또는 유기용매용액으로부터 수화물 등의 금속 산화물의 전구체(1차 입자)를 제조하고, 이 전구체를 공기 중이나 불활성가스 중에서 소성하여 세라믹스 분말을 얻는다. 그러나, 결정성이 우수한 유전체 분말을 얻는 것은 곤란하고, 또한 금속 산화물의 전구체의 결합이 강하여 최종적으로 큰 덩어리로서 얻어지기 때문에 유전체 분말을 얻기 위해서는 소성 후의 유전체를 분쇄하지 않으면 안된다. 이와 같이 하여 얻어진 분말에서는 개개의 입자의 형상이 비정형이고, 또한 입자도 분포도 넓은 것으로 되며, 게다가 불순물이 혼합하는 가능성도 높다.

여기서, 분말에서의 입자의 형상이나 입자도 분포를 개량한 수열합성법이나 기상반응법 등도 제안되어 있지만, 어느 것도 생산성이나 비용 면에서 공업적으로 효율적으로 제조하는 것은 곤란하다. 또한 일본 공개특허공보 평7-33579호에는 용액에 원료를 용해시킨 것을 가수분해나 공침법 등에 의해 산화물의 미세 분말을 형성하고, 미세 분말을 열처리하여 결정화 및 입자를 성장시키고, 또한 얻어진 것에 포함되는 글래스를 용해제거하여, 입자직경이 고른 단결정 분말을 얻는 방법이 개시되어 있다. 그러나, 이 방법에서는 공정이 복잡하고, 공업적으로 양산하는 것이 곤란하다.

또한 일본 공개특허공보 평9-263496호에는 평균입자직경이 10 μm 이하의 티탄산바륨을 1618 $^{\circ}\text{C}$ 미만 1200 $^{\circ}\text{C}$ 이상으로 소성시켜, 단결정의 티탄산바륨을 얻는 방법이 개시되어 있다. 이 방법에서는 티탄산바륨의 융점보다 낮은 온도에서, 소결시에 온도 균배를 하여 이상입자를 성장시키고, 단결정의 티탄산바륨을 형성하고 있다. 그러나, 이 방법에서는 얻어지는 티탄산바륨의 직경이 500 μm 정도로 크고, 미립자를 얻는 것은 아니다. 또한 단결정은 다결정체 중에 함유된 상태로 얻어지기 때문에 단결정을 취출하는 데는 다결정체를 농염산 중에 침적시켜 다결정 부분을 파괴하는 공정이 필요하다.

그런데, 세라믹스 분말은 분말 만을 단체로서 이용하는 경우도 있지만, 수지재료에 분산한 복합재료로서 이용하는 경우도 있다. 복합재료로서 이용되는 세라믹스 분말에는 수지재료에 대한 분산성, 충전성이 요구된다. 수지재료에 대한 분산성, 충전성을 확보하기 위한 하나의 요소로서 분말을 구성하는 미립자의 입자직경이 있다.

그러나, 상기한 공동침전법에서 얻어지는 세라믹스 분말은 입자직경이 너무 미세하여 수지재료에 대한 분산성, 충전성을 확보하는 것이 불가능하다. 또한, 상기한 액상법에 의해 얻어진 세라믹스 분말은 분쇄에 의해 얻어지는 것이기 때문에 분말의 형태가 비정형으로 되며, 수지재료에 대한 분산성, 충전성을 확보하는 것이 불가능하다. 또한 상기 일본 공개특허공보 평9-263496호에 기재된 단결정의 티탄산바륨은 입자직경이 크기 때문에 높은 충전성을 얻는 것이 곤란하다.

발명이 이루고자 하는 기술적 과제

본 발명은 우수한 특성을 갖는 구형상의 단결정 세라믹스 분말을 제조하는 방법 및 단결정 세라믹스 분말을 제공하는 것을 목적으로 한다.

발명의 구성 및 작용

본 발명은 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체를 가열로 실은 상태에서 가열처리 영역을 통과시키고, 그 후 냉각함으로써 단결정 세라믹스 분말을 용이하게 제조할 수 있는 것을 말한다. 그리고, 이 방법에 따르면, 구형도가 높은 단결정 세라믹스 분말을 용이하게 얻을 수 있다. 그리고, 이와 같은 구형도가 높은 미세한 단결정 세라믹스 분말을 이용함으로써 수지재료와의 복합재료 중으로의 충전성이 향상하여 분말이 갖는 특성을 유효하게 발휘할 수 있다.

본 발명은 이상의 지식에 기초하여 이루어진 것이고, 분체 공급 공정에 있어서 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체를 캐리어 가스와 함께 가열처리 영역에 공급하고, 가열처리 공정에 있어서 가열처리 영역에 공급된 분체를 단결정화하는데 필요한 온도, 구체적으로는 그 분체의 용점 이상으로 가열하고, 냉각 공정에 있어서 가열처리 공정에서 얻어진 생성물을 결정화 과정을 거쳐 냉각함으로써 단결정 세라믹스 분말을 얻는 것을 특징으로 하는 단결정 세라믹스 분말의 제조방법이다.

이 제조방법을 사용하면, 0.9 이상의 구형도를 구비하는 단결정 세라믹스 분말을 얻을 수 있다.

이 제조방법의 가열처리 공정에서는 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체를 용융시켜 용융물을 형성한 후, 냉각 공정에 있어서 결정화시키는 것으로 구형도가 높고 결정성이 우수한 단결정 세라믹스 분말을 얻을 수 있다. 가열처리 공정에서의 용융 처리 후, 연속하여 냉각 공정에서 결정화를 행함으로써 적은 에너지로 단결정 분말의 제조가 가능해진다. 이 경우 가열처리 공정은 전기관형상 로 중에서 행해지는 것이 바람직하다. 전기관형상 로 중에서 행함으로써 온도 및 온도 프로파일의 컨트롤이 용이해지기 때문에 제조상 바람직하다.

세라믹스 성분으로 이루어지는 분체는 50 μm 이하의 입자로 형성되어 있으면, 입자직경이 30 μm 이하의 단결정 세라믹스 분말을 얻을 수 있다.

또한, 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체는 평균입자직경이 1 μm 이하의 1차 입자로 형성된 과립이면 입자직경이 작은 단결정 세라믹스 분말을 얻을 수 있기 때문에 바람직하다.

본 발명의 단결정 세라믹스 분말의 제조방법을 다른 관점에서 파악하면 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체를 부유시키면서 가열로 중을 이동시키고, 얻어진 생성물을 냉각함으로써 구형도가 0.9 이상의 단결정 세라믹스 분말을 얻는 것을 특징으로 하는 제조방법으로서 잡을 수 있다. 이와 같이 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체를 부유시키면서 가열하는 것으로 구형도가 높은 단결정 세라믹스 분말을 얻을 수 있다.

본 발명에 따라 얻어지는 단결정 세라믹스 분말은 평균입자직경 0.1~30 μm 이고, 또한 0.9 이상의 구형도를 구비하는 단결정 세라믹스 분말이다. 이 단결정 세라믹스 분말은 입자직경이 작고 구형도도 높기 때문에 우수한 특성을 갖고, 특히 수지 등에 대한 충전성이 높다.

이 단결정 세라믹스 분말은 예를 들어 산화를 자성재료나 산화를 유전체 재료로 구성되고, 우수한 자기적 특성이나 전기적 특성을 나타내게 된다.

이 단결정 세라믹스 분말로서 평균입자직경 1~20 μm 이면 더욱 우수한 충전성을 갖는 것으로 된다.

본 발명은 자성체 또는 유전체로 이루어지는 단결정 구형상 산화를 분말과, 상기 구형상 산화를 분말을 분산, 유지하는 결합재로 이루어지는 복합재료에 적용할 수 있다. 그리고, 이 복합재료에 있어서, 구형상 산화를 분말은 평균입자직경이 0.1~30 μm , 0.9 이상의 구형도를 구비하는 것을 특징으로 한다. 구형도가 높은 미세한 분말을 사용함으로써 수지재료와의 복합재료 중으로의 충전성이 향상하여 분말이 갖는 특성을 유효하게 발휘할 수 있다.

이상의 복합재료에 있어서, 결합재로서는 수지를 사용할 수 있다. 이 때, 구형상 산화를 분말은 30~98wt%의 범위에서 함유하는 것이 바람직하다.

또한, 이상의 복합재료에 있어서, 구형상 산화를 분말을 유전체 재료로 구성할 수 있다. 그리고, 본 발명에서는 구형상 산화를 분말을 구성하는 유전체 재료보다도 저유점의 유전체 재료에 의해 결합재를 구성할 수 있다. 이 때, 구형상 산화를 분말을 30~70 체적%의 범위에서 함유시키는 것이 바람직하다.

또한, 이상의 복합재료에 있어서, 구형상 산화를 분말을 자성체 재료로 구성할 수도 있다. 그리고, 본 발명에서는 구형상 산화를 분말을 구성하는 자성체 재료보다도 저유점의 자성체 재료에 의해 결합재를 구성할 수 있다. 이 때, 구형상 산화를 분말을 30~70 체적%의 범위로 함유시키는 것이 바람직하다.

본 발명은 이상의 복합 재료를 사용한 전자부품을 제공한다. 이 전자부품은 유전체를 중에 내부 금속전극이 배치된 전자부품에 있어서, 유전체층이 유전체 재료로 이루어지는 구형상 산화를 분말과, 이 구형상 산화를 분말을 분산, 유지하는 결합재로 이루어지는 복합재료로 이루어지고, 구형상 산화를 분말은 평균입자직경이 0.1~30 μm , 0.9 이상의 구형도를 구비하는 것을 특징으로 한다. 또한, 본 발명은 자성체를 중에 내부 금속전극이 배치된 전자부품에 있어서, 자성체층이 자성체 재료로 이루어지는 구형상 산화를 분말과, 이 구형상 산화를 분말을 분산, 유지하는 결합재로 이루어지는 복합재료로 이루어지고, 구형상 산화를 분말은 평균입자직경이 0.1~30 μm , 0.9 이상의 구형도를 구비하는 것을 특징으로 하는 전자부품을 제공한다.

(발명의 실시형태)

이하, 본 발명의 실시형태를 설명한다.

본 발명에 따른 단결정 세라믹스 분말의 제조공정 개략의 일례를 도 1에 기초하여 설명한다. 도 1에 나타내는 바와 같이, 본 발명의 제조방법은 원료를 분쇄하여 1차 입자를 얻는 1차 입자 형성 공정, 1차 입자로부터 과립을 형성하는 과립 형성 공정, 과립으로 이루어지는 분체를 공급하는 분체 공급 공정, 공급

본 분체를 소정 온도로 가열하는 가열처리 공정, 가열처리에 의해 얻어진 결정화를 냉각하는 냉각 공정 및 후처리 공정으로 구성된다.

먼저, 1차 입자 형성 공정에 있어서, 세라믹스 성분으로 이루어지는 원료로부터 1차 입자를 형성한다. 1차 입자 형성 공정에서는 세라믹스 성분으로 이루어지는 원료를 분쇄하고, 바람직하게는 평균입자직경 1 μ m 이하로 되도록 조정한다. 이 입자직경은 최종적으로 얻어지는 단결정 세라믹스 분말의 입자직경을 좌우할 뿐만 아니라 이와 같은 입자직경의 1차 입자를 사용함으로써 단결정 세라믹스 분말의 품질을 우수한 것으로 할 수 있다. 분쇄 방법은 특히 한정되지 않지만 예를 들어 볼밀(ball mill) 등을 사용할 수 있다.

본 발명에서의 세라믹스 성분이라는 것은 세라믹스으로서 인식되는 산화물, 질화물, 탄화물 등의 화합물을 포함하고 있다. 또한, 단일 세라믹스 뿐만 아니라 복수의 세라믹스의 혼합체, 복합산화물, 복합질화물 등의 복합화합물도 포함하고 있다. 세라믹스 성분의 구체로서 유전체 재료나 자성재료가 있다.

유전체 재료로서는 예를 들어 티탄산-바륨-네오디뮴계 세라믹스, 티탄산-바륨-주석계 세라믹스, 아연-발륨계 세라믹스, 미산화티탄 세라믹스, 티탄산바륨계 세라믹스, 티탄산아연계 세라믹스, 티탄산스트론튬계 세라믹스, 티탄산칼슘계 세라믹스, 티탄산비스무트계 세라믹스, 티탄산마그네슘계 세라믹스 등이나 CaWO_4 계 세라믹스, $\text{Ba}(\text{Mg}, \text{Nb})\text{O}_4$ 계 세라믹스, $\text{Ba}(\text{Mg}, \text{Ta})\text{O}_4$ 계 세라믹스, $\text{Ba}(\text{Co}, \text{Mg}, \text{Nb})\text{O}_4$ 계 세라믹스, $\text{Ba}(\text{Co}, \text{Mg}, \text{Ta})\text{O}_4$ 계 세라믹스 등을 들 수 있다. 이들은 단독 또는 2종류 이상을 혼합하여 사용할 수 있다.

또한, 미산화티탄계 세라믹스이라는 것은 조성적으로는 미산화티탄만을 포함하는 계, 또는 미산화티탄에 다른 소량의 첨가물을 포함하는 계이고, 주성분으로서 미산화티탄의 결정구조가 유지되어 있는 것을 의미한다. 다른 계의 세라믹스에 대해서도 마찬가지이다. 또한, 미산화티탄은 TiO_2 로 표시되는 물질로 여러 결정구조를 갖는 것이지만, 유전체 세라믹스로서 사용되고 있는 것은 루틸(rutile) 구조의 것이다.

자성재료로서는 자성을 갖는 산화물을 사용한다. 예를 들어 Mn-Zn계 페라이트, Ni-Zn계 페라이트, Mn-Mg-Zn계 페라이트, Ni-Cu-Zn계 페라이트 등을 들 수 있다. 또한, Fe_3O_4 나 Fe_2O_3 등의 산화철이어도 좋다.

또한, 이들 세라믹스 성분은 시판되는 세라믹스를 사용할 수 있고, 그 외 세라믹스 성분을 형성하기 위한 조성물이나 재료를 소정온도로써 세라믹스 성분을 얻을 수 있다. 예를 들어 산화바륨과 티탄산을 혼합하여 과립형상의 복합산화물을 얻어, 그 복합산화물을 적당한 크기로 분쇄한 것을 소성하여 반응시킴으로써 티탄산바륨 등의 세라믹스 성분을 얻을 수 있다.

다음에, 과립 형성 공정에 있어서, 상기와 같이 하여 얻어진 1차 입자로부터 과립을 형성한다. 구체적으로는, 1차 입자를 스프레이 노즐로부터 분무하기 위한 슬러리를 작성한다. 슬러리는 1차 입자를 용매에 적당량 첨가한 후에, 물밀 등의 혼합기를 사용하여 혼합함으로써 얻을 수 있다. 용매로서는 물이나 에탄올을 사용할 수 있지만, 1차 입자의 분산성을 향상하기 위해 분산제를 첨가하는 것이 추천된다. 분산제의 첨가량은 예를 들어 1차 입자의 중량에 대하여 약 1% 정도이다. 1차 입자 끼리를 기계적으로 결합하기 위한 결합제, 예를 들어 PVA(폴리비닐알콜)를 첨가할 수도 있다. 얻어진 슬러리를 스프레이 노즐에 의해 분무하여 액적을 형성한다.

여기서, 스프레이 노즐은 상기 슬러리와 압축기체를 분무하기 위한 것이고, 2류체 노즐 또는 4류체 노즐 등을 사용할 수 있다. 압축기체(예를 들어 공기, 질소 가스 등)와 함께 스프레이 노즐로부터 토출된 슬러리는 미립화되어 분무를 형성한다. 분무 중의 액적의 입자직경은 슬러리와 압축기체의 비율에 의해 컨트롤할 수 있다. 액적의 입자직경을 컨트롤함으로써 최종적으로 얻어지는 단결정 세라믹스 분말의 입자직경을 제어할 수 있다. 스프레이 노즐에 의한 분무의 공정은 소정의 챔버내에서 행해진다. 또한, 가열 하에서 건조를 겸한 분무건조법에 의해 과립을 얻어도 좋다. 분무건조법을 사용하면, 분쇄분말과 같이 거대한 분말이 혼합하는 경우가 거의 없기 때문에 최종적으로 얻어지는 제품의 품질의 신뢰성을 확보할 수 있다.

이와 같이 하여 스프레이 노즐을 사용하면 본 발명에 있어서 사용하는 데 적당한 입자직경이 작은 과립분을 얻을 수 있고, 예를 들어 1-20 μ m 정도의 미세한 과립분을 얻을 수 있다. 이 입자직경은 최종적으로 얻어지는 단결정 세라믹스 분말의 입자직경을 좌우한다. 입자직경은 전술한 바와 같이 슬러리와 압축기체의 비율에 의해 컨트롤할 수 있고, 또한 슬러리 끼리를 충돌시킴으로써 작은 액적을 작성하는 것도 가능하다. 따라서, 이와 같이 하여 얻어진 과립은 본체 공급 공정으로 보내진다.

본체 공급 공정에서는 과립 형성 공정에서 얻어진 과립을 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체로 하여 캐리어 가스와 함께 가열영역으로 공급한다. 본체 공급 공정을 실시하는 구체적인 구성으로서 도 1에는 캐리어 가스와 과립을 별도 준비하고, 노즐 N를 통하여 캐리어 가스와 함께 과립을 가열처리 공정으로 공급하는 형태를 기재하고 있다. 캐리어 가스로서는 각종 가스가 사용가능하고, 예를 들어 공기, 질소 가스, Ar 가스 및 Ne 가스 등을 이용할 수 있다. 1300 $^{\circ}$ C 이상의 가열이 필요한 재료에 대해서는 가열처리 공정에서의 NO_x 의 발생을 고려하면 Ar 가스나 Ne 가스를 사용하는 것이 바람직하다.

본체 공급 공정에서의 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체를 가열처리 공정에 공급하는 방법은 도 1에 기재된 방식에 한정되지 않는다. 예를 들어 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체에 대하여 캐리어 가스를 포함하는 압축가스를 불어 부착시킴으로써 가열처리 공정에 공급하는 방식을 채용할 수 있다. 또한, 분산기를 이용한 공급, 분급기나 분쇄기의 출력을 이용하여 공급, 즉 분급 또는 분쇄하는 것으로 출력측에서 얻어지는 분말을 가열처리 공정에 들여보내는 것도 가능하다.

본 실시형태에 있어서는 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체의 분무는 건조상태이어도, 수분 등을 포함한 습윤상태이어도 좋다.

다음에, 가열처리 공정에 있어서, 본체 공급 공정으로부터 스프레이 노즐을 사용하여 공급된 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체를 가열 영역에서 소결 처리함으로써 단결정의 세라믹스 분말을 얻는다.

가열처리 공정은 가열로내에서 실현된다. 가열방식으로서에는 전기에 의한 가열, 가스의 연소열에 의한 가

별 및 고주파 가열 등의 용지의 합성을 채용할 수 있다. 특히 전기방열성료를 사용하면 연소 가스에 의한 발생에 비해 토내의 분위기의 제어가 용이하다. 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체는 토내에서 기류를 형성하는 캐리어 가스와 함께 가열로내를 부유한 상태에서 단결정화 및 구형상화된다. 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체의 유속은 포집효율, 열분해 온도에 따라 적절히 정해지게 되지만, 대략 0.05~30 m/s의 범위, 특히 1~5 m/s에서 선택하는 것이 바람직하다. 분말의 유속은 캐리어 가스의 유속을 제어함으로써 변경할 수 있다. 이 때, 가열로내에 세라믹스 성분의 분체가 1~10초 정도 체류하도록 제어하는 것이 바람직하다. 단, 적어도 세라믹스 분말이 비정질로 되지 않는 일체 냉각속도보다 느린 것이 바람직하다. 일체 냉각속도는 분말에 따라 다르고, 예를 들어 티탄산바륨의 경우에는 일체 냉각속도는 1.3×10^4 (K/sec)이다. 이 속도보다 빠르면, 얻어지는 세라믹스 분말은 글래스(비정질)로 된다. 또한, 단결정화에 필요한 시간은 입자직경에 의존하고, 작을 수록 그 시간은 짧아진다.

가열의 조건, 특히 온도 및 시간은 세라믹스의 조성에 따라 적절히 정해진다. 가열의 조건으로서 가열로 내의 분위기는 예를 들어 유전체 재료나 자성재료 등, 목적으로 하는 최종 생성물인 단결정 세라믹스 분말의 종류에 따라 산화성 분위기, 환원성 분위기 또는 불활성 분위기가 선택된다. 또한 선택된 분위기에 따라 캐리어 가스를 선택할 수 있고, 또는 필요한 가스를 가열로내로 공급한다.

가열온도로서는 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체가 단결정화하는 온도로 설정하면 좋다. 구체적으로는 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체의 융점 이상으로 설정한다. 융점 이상으로 가열함으로써 세라믹스 성분의 분체가 용융하고, 단결정이 얻어진다. 또한, 세라믹스 성분의 분말은 일단 용융하기 때문에 표면장력에 의해 얻어지는 세라믹스 분말의 형상이 보다 완전한 구에 가까워진다.

본 실시형태와 같이, 고체상의 세라믹스 성분의 분체를 건조상태에서 가열로에 공급하면 고체상의 세라믹스 성분의 분체를 액체로 분산시켜 공급하는 분무열분해법과 비교하여 액체의 존재에 의한 감열이 없어지기 때문에 보다 적은 에너지로 제조할 수 있다. 이 경우, 예를 들어 과립 형성 공정에 있어서 형성된 과립을 일단 유지 보관시키는 일 없이 직접 캐리어 가스와 함께 가열처리 공정의 가열로에 공급할 수 있다.

가열처리 공정에서 얻어진 생성물은 냉각 공정으로 이행된다. 구체적으로는 가열로 중에 냉각 존을 설치하거나 또는 가열로부터 캐리어 가스와 함께 대기중에 배출시킴으로써 생성물을 냉각한다. 이 냉각은 방출냉각이든 중시든, 냉각 매체를 사용하여 강제적으로 냉각할 수도 있다. 이 냉각 공정을 거침으로써 소망하는 단결정 세라믹스 분말을 얻는다. 생성물을 비교적 급격히 냉각함으로써 생성물의 구체의 형상이 유지된다. 또한, 냉각 공정에서는 가열된 분체가 그대로 냉각되기 때문에 얻어지는 단결정 세라믹스 분말은 입자직경이 0.1~30 μ m 정도로 작은 입자직경의 것을 얻을 수 있다. 보다 바람직하게는 1~20 μ m 정도의 것을 얻는다.

냉각 공정 후에는 예를 들어 사이클론이나 백 필터(bag filter)에 의해 분말을 포집하는 한편, 캐리어 가스에 대해서는 적절한 배가스 처리를 행한 후에 배기시킨다.

얻어지는 단결정 세라믹스 분말은 단결정이며, 또한 구형상이다. 여기서 「구형상」이라는 것은 표면이 평활한 완전한 구형상 외에 거의 완전한 구에 가까운 다면체를 포함한다. 구체적으로는 Wulff 모델로 표현되는 것과 같은 안정한 결정면으로 둘러싸인 등방적인 대칭성을 갖고, 또한 구형도가 1에 가까운 다면체 입자도 포함된다. 여기서 「구형도」라는 것은 Wadell의 실용 구형도, 즉 입자의 투사면적에 동일한 원의 직경의 입자의 투사상에 외접하는 최소 원의 직경의 비이다. 본 실시형태에서는 구형도는 0.9~1인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.95~1이다. 구형도가 0.9 이상이면, 단결정 세라믹스 분말을 수지 재료에 분산한 복합재료로서 이용할 때 단결정 세라믹스 분말이 수지재료에 대하여 균일하게 분산하기 쉬워지고, 게다가 소성되는 경우에 있어서 불균일성에 기인한 크랙을 발생하기 어렵다.

이와 같이 본 실시형태에서 얻어지는 단결정 세라믹스 분말은 결정입자계나 불순물을 갖지 않고, 단상이고, 또한 단결정이다. 그 때문에 이 단결정 세라믹스 분말은 유전체 재료나 자성재료로서 사용하는 경우에 자성 또는 유전특성의 향상에 기여할 수 있고, 우수한 특성을 나타낸다.

또한, 본 실시형태에 기재된 방법으로 단결정 세라믹스 분말을 형성하면, 종래의 방법에서 사용되고 있는 산이나 유기용매를 사용하지 않기 때문에, 유해 가스 등의 발생도 없고, 또한 비교적 저가의 설비에 의해 제조할 수 있다. 또한, 본 실시형태에 있어서, 분체 공급 공정에 있어서 공급되는 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체로서는 분말, 과립분, 분쇄분 등, 그 형태에 관계없이 입자로 구성되는 여러 형태를 포함하고 있다. 따라서, 분체 공급 공정에 있어서 공급되는 분체는 상기 실시형태와 같은 과립에 한정되지 않고, 예를 들어 세라믹스 성분을 분쇄한 분체이든 좋다. 이 경우, 비교적 큰 입자직경을 갖는 분체를 사용함으로써 비교적 큰 단결정 세라믹스 분말을 형성하는 것도 가능하다. 구체적으로는 50 μ m 이하의 입자를 사용하는 것으로 30 μ m 이하의 단결정 세라믹스 분말을 형성할 수 있다.

또한, 본 실시형태에서는 입자직경이 작고, 또한 구형상인 단결정 세라믹스 분말을 얻을 수 있다. 이와 같은 단결정 세라믹스 분말은 응집성이 낮고, 분산성과 충전성이 우수한 것으로 된다. 따라서, 얻어진 단결정 세라믹스 분말을 분산, 유지하는 결합재와 혼합하여 복합재료를 형성할 수 있다.

결합재로서 수지를 사용할 수 있다. 이 때, 복합재료 중에 단결정 세라믹스 분말을 30~98wt%의 범위로 함유하는 것이 바람직하다. 또한, 이 수지로서 예를 들어 열가소성 수지, 열경화성 수지의 쌍방이 이용 가능하고, 구체적으로는 에폭시 수지, 페놀 수지, 폴리올레핀계 수지, 폴리이미드 수지, 폴리에스테르 수지, 폴리페닐렌옥사이드(polyphenylene oxide) 수지, 멜라민(melamine) 수지, 시아네이트에스테르(cyanate ester)계 수지, 디알킬프탈레이트(dialkyl phthalate) 수지, 폴리비닐벤조에테르화합물 수지, 액정 폴리머, 불소계 수지, 폴리비닐부티랄(polyvinyl butyral) 수지, 폴리비닐알콜 수지, 에테르셀룰로오스 수지, 니트로셀룰로오스 수지, 아크릴 수지 중 적어도 1종류 이상 포함한 수지 등을 들 수 있다.

단결정 세라믹스 분말이 유전체 재료로 구성되는 경우, 결합재로서 상기 유전체 재료보다도 저유전인 유전체 재료를 사용할 수 있다. 보다 저온에서의 소결에 의한 복합유전체 재료의 제조를 가능하게 하는 한편, 그와 같은 저온에서의 소결에 의해 종래는 높은 온도의 소결이 아니면 얻어지지 않았던 특성을 얻는 것이 가능해진다. 또한, 복합재를 구성하는 저유전 유전체 재료는 단결정 세라믹스 분말보다도 입자직경

이 작은 분말을 사용하여 소결에 제공하는 것이 바람직하다. 단결정 세라믹스 분말의 간격을 소직경 분말로 채움으로써 단결정 세라믹스 분말을 균일하게 분산시키기 때문이다.

이상 생각한 바는 단결정 세라믹스 분말이 자성체 재료로 구성되는 경우에도 적용할 수 있다. 즉, 상대적으로 용점이 낮은 자성체 재료 속에 상대적으로 용점이 높은 자성체 재료로 이루어지는 단결정 세라믹스 분말이 분산, 유지된 복합자성체료를 얻을 수 있다.

본 발명에서는 이상의 복합체료를 여러 전자부품에 적용할 수 있다. 그 밀레가 도 11 및 도 12에 도시되어 있다. 도 11은 전자부품의 밀레인 고주파 모듈을 나타내는 실시도이다. 이 고주파 모듈은 복합유전체층(4)의 표면에 다이오드(6), 트랜지스터(7) 및 접 저항(8)이 실장되어 있다. 또한, 고주파 모듈은 복합유전체층(5)의 이면 및 내부에 그랜드 전극(1)을 배치하고 있다. 또한, 고주파 모듈은 그 내부에 스루홀 도체(2), 문덴서 형성전극(3)이 배치되어 있다. 그리고, 이 복합유전체층(4)에 이상 설명한 복합유전체 재료로 적용한다. 또한, 도 12는 전자부품의 밀레인 현 코일을 나타내는 실시도이다. 이 현 코일은 복합자성체층(14)의 내부에 코일 형성 도체(13)와 스루홀 도체(12)를 배치하고 있다. 또한, 이 현 코일은 복합자성체층(14)의 측면에 외부단자전극(11)이 형성되어 있다. 그리고, 이 복합자성체층(14)에 전술한 복합자성체 재료를 적용한다. 또한, 이상은 어디까지나 전자부품의 밀레이고, 기판 등의 다른 전자부품에 본 발명의 복합자성체료를 적용할 수 있는 것은 말할 것도 없다.

(실시예)

이하 본 발명을 구체적인 실시예에 기초하여 설명한다.

(실시예 1)

산화바륨(BaO) 분말 및 산화티탄(TiO_2) 분말을 몰비로 1:1로 칭량한 것에 물을 가하여 분말에서 12시간 혼합함으로써 슬러리(이하, 제 1 슬러리)를 얻었다. 또한, 혼합에 앞서서 분산제(동마합성사제 A-30SL)를 분말의 중량에 대하여 1%의 비율로 첨가하였다.

제 1 슬러리를 분무건조기에서 건조, 과립화를 하였다. 이 때의 분무, 건조조건은 특히 한정되는 것은 아니지만, 과립분의 입자직경이 $200\mu m$ 이하로 되는 것과 같은 조건을 설정하는 것이 좋다.

얻어진 과립분을 $1250^\circ C$ 의 온도로 1시간 소성함으로써 복합산화물 소결체로서 티탄산바륨을 얻었다. 이 소결체에 물을 가하고 또한 분산제(동마합성사제 A-30SL)를 소결체의 중량에 대하여 1%의 비율로 첨가한 후 분말에서 48시간 분쇄함으로써 1차 입자로서 평균입자직경 $0.3\mu m$ 의 분말을 포함하는 슬러리(제 2 슬러리)를 작성하였다. 이 제 2 슬러리에 대하여 10wt% 농도로 희석시킨 PVA(폴리비닐알콜) 용액을 분말의 총중량에 대하여 2wt% 첨가하고, 또한 제 2 슬러리 중의 분말이 40wt%로 되도록 조절을 하였다.

제 2 슬러리에 분무건조법을 적용하여 과립분을 작성하였다. 사용한 분무건조기는 후지사키전기(주)제의 MDL-0500이고, 4류체 방식의 노즐을 사용하고, 송액량을 40cc/min, 노즐 에어량을 160NL/min, 급기온도를 $190^\circ C$ 의 조건으로 하였다. 얻어진 과립분의 평균입자직경은 $9.7\mu m$ 이다.

또한, 1차 입자의 작성시에 분말의 조건을 바꾸어 평균입자직경이 $1.5\mu m$ 인 분말을 1차 입자로서 사용한 점을 제외하고 상기와 마찬가지로 하여 과립분을 얻은 바, 과립분의 평균입자직경은 $58\mu m$ 로 되고, 평균입자직경을 $30\mu m$ 이하로 하는 것이 곤란하다는 것이 확인되었다.

질소를 캐리어 가스로 하여 얻어진 과립분을 세라믹스관으로 이루어지고 가열원을 전기로 하는 가열로 중에 공급하였다. 가열로내 온도(가열처리 온도)는 $1650^\circ C$ 이다. 또한, 캐리어 가스의 유량을 11/min으로 하여, 세라믹스관 중에서의 과립분의 체류시간을 1~10초 정도가 되도록 조절하였다.

세라믹스관을 통과한 분말에 대해서 형광 X선 분석장치를 사용한 X선 회절에 의해 조직을 관찰하였다. X선 회절의 결과를 도 2에 나타낸다. 도 2에 나타내는 바와 같이 티탄산바륨($BaTiO_3$)의 피크 만이 관찰된 것으로부터 얻어진 분말은 티탄산바륨($BaTiO_3$)의 단상으로 구성되는 세라믹스 분말인 것이 확인되었다. 또한, 티탄산바륨($BaTiO_3$)의 융점은 $1637^\circ C$ 이다.

또한, 얻어진 티탄산바륨 분말을 SEM(주사전자현미경)에 의해 관찰하였다. 그 결과, 입자직경 $0.1\sim10\mu m$ 정도의 거의 완전한 구형상에 가까운 분말인 것 및 이들 분말에 응집이 없는 것이 확인되었다. 또한, 평균입자직경을 측정할 바, 약 $2.5\mu m$ 이고, 또한 구형도는 약 1인 것이 판명되었다. 또한, 도 3에 SEM에 의한 분말의 확대사진을 나타내는데, 개개의 입자를 상세하게 관찰하면, 입자 표면 전체에 걸쳐서 대칭성을 갖는 결정면의 파제트(facet)가 보이고, 입자내에 입자계를 포함하지 않는 단결정 입자인 것이 판명되었다.

또한, 얻어진 분말을 TEM(투과전자현미경)에 의해 관찰하였다. 전자선 회절 상을 도 4에 나타내는데, 분말 단결정 특유의 규칙성이 있는 구조를 갖고 있는 것이 확인되었다.

(비교예 1)

가열온도를 $1400^\circ C$ 로 한 이외는 실시예 1과 마찬가지로 하여 티탄산바륨 분말을 얻었다. 얻어진 분말의 SEM에 의한 분말의 확대사진을 도 5에 나타낸다. 도 5로부터 티탄산바륨 입자의 표면에 입자계의 존재가 관찰되었다. 또한, 전자선 회절 상을 도 6에 나타내는데, 이 전자선 회절 상의 결과로부터도 단결정이 아닌 것이 확인되었다.

(실시예 2)

산화바륨(BaO) 분말, 산화티탄(TiO_2) 분말, 산화네오디뮴(Nd_2O_3) 분말 및 산화망간(Mn_2O_3) 분말을 13:8:54:7:31:4:0:1의 몰비에서 칭량한 것을 사용한 점 이외는 실시예 1과 마찬가지로 하여 세라믹스 분말을 얻었다.

얻어진 분말을 구성하는 입자의 평균입자직경은 $2.5\mu m$ 이고, 그 형상은 거의 완전한 구형상에 가까운 미립

자이었다. 또한 입자 표면 전체에 걸쳐서 대형성을 갖는 결정면의 파셋트가 관찰되고, 입자내에 입자계를 포함하지 않는 단결정인 것이 확인되었다.

(실시에 3)

과립분의 형성시에 가능한 작은 형상의 과립분이 되도록 스프레이 방식의 분무에 의한 과립분을 형성한 점 미되는 실시예 2와 마찬가지로 하여 세라믹스 분말을 얻었다. 또한, 과립분의 평균입자직경은 9.1 μ m이었다.

얻어진 입자를 관찰한 바, 실시예 2와 거의 동일한 단결정 입자가 생성되어 있는 것이 확인되었다.

(실시에 4)

산화철(Fe_2O_3) 분말, 산화니켈(NiO) 분말 및 산화아연(ZnO) 분말을 45:3:47:1:7.6의 몰비에서 청량한 것에 물을 가하여 볼밀에서 12시간 혼합함으로써 슬러리(이하, 제 1 슬러리)를 얻었다. 또한, 혼합에 앞서서 분산제(동아합성사제 A-30SL)를 분말의 중량에 대하여 1%의 비율로 첨가하였다.

제 1 슬러리를 분무건조기에서 건조, 과립화를 하였다. 이 때의 분무, 건조조건은 특히 한정되는 것은 아니지만, 과립분의 입자직경이 200 μ m 이하로 되는 것과 같은 조건을 설정하는 것이 좋다.

얻어진 과립분을 1000 $^{\circ}C$ 의 온도에서 1시간 소성함으로써 복합산화물 소결체를 얻었다. 이 소결체에 물을 가하고 또한 분산제(동아합성사제 A-30SL)를 소결체의 중량에 대하여 1%의 비율로 첨가한 후 볼밀에서 48시간 분쇄함으로써 1차 입자로서 평균입자직경 0.3 μ m의 분말을 포함하는 슬러리(제 2 슬러리)를 작성하였다. 이 제 2 슬러리에 대하여 10wt% 농도로 화석시안 PVA(폴리비닐알콜) 용액을 분말의 총중량에 대하여 2wt% 첨가하고, 또한 제 2 슬러리 중의 분말이 60wt%로 되도록 조정을 하였다.

제 2 슬러리에 분무건조법을 적용하여 과립분을 작성하였다. 사용한 분무건조기는 후지사키전기(주)제의 MDL-0500이고, 4류제 방식의 노즐을 사용하고, 송액량을 40cc/min, 노즐 에어량을 160NL/min, 급기온도를 190 $^{\circ}C$ 의 조건으로 하였다. 얻어진 과립분의 평균입자직경은 8.9 μ m이다.

질소를 캐리어 가스로 하여, 얻어진 과립분을 세라믹스판으로 미루어지고 가열원을 전기로 하는 가열로 중으로 공급하였다. 가열로내 온도(가열처리 온도)는 1500 $^{\circ}C$ 이다. 또한, 캐리어 가스의 유량은 0.8l/min으로 하여 과립분의 세라믹스판 중에서의 체류시간을 1~10초 정도로 되도록 조절하였다. 이와 같이 하여 과립분으로부터 세라믹스 분말(자성 페라이트 재료)을 얻었다.

얻어진 세라믹스 분말에 대해서 형광 X선 분석장치를 사용한 X선 회절에 의해 조적을 관찰하였다. 그 결과, Fe_2O_3 , Fe_3O_4 , FeO , $NiFe_2O_4$, $ZnFe_2O_4$, $CuFe_2O_4$ 의 피크가 관찰되지 않고, Ni-Cu-Zn 페라이트의 단상으로 구성된 분말인 것이 확인되었다.

또한, 얻어진 Ni-Cu-Zn 페라이트 분말을 SEM에 의해 관찰하였다. 그 결과, 입자직경 0.1~10 μ m 정도의 거의 완전한 구형상에 가까운 분말인 것, 및 이들 분말에 응집이 없는 것이 확인되었다. 또한, 평균입자직경을 측정한 바, 약 2.5 μ m이고, 구형도는 약 1이었다. 또한, 도 7에 SEM에 의한 분말의 확대사진을 나타내는데, 개개의 입자를 상세히 관찰하면, 입자 표면 전체에 걸쳐서 대형성을 갖는 결정면의 파셋트가 보이고, 입자내에 입자계를 포함하지 않는 단결정 입자인 것이 판명되었다.

또한, 진동자력계를 사용하여 단결정 세라믹스 분말의 자기특성을 측정하였다. 결과를 표 1 및 도 8에 나타낸다. 또한, 이 자기특성에 대해서는 후술한다.

또한, 얻어진 단결정 세라믹스 분말을 에폭시 수지에 대하여 함유율이 40vol%로 되도록 혼합하고, 슬러리(이하, 제 3 슬러리)를 작성하였다. 이 때, 에폭시 수지로서, 다관능 에폭시 수지(polyfunctional epoxy resin)로서 에피비스(epibis)형 에폭시 수지(유카셀에폭시사제 에피코트(Epikote) 1001 및 에피코트 1007)를 각각 26.9wt%씩 함유시키고, 또한 비스페놀A(bisphenol A)형 고분자 에폭시 수지(유카셀에폭시사제 에피코트 1225)를 23.1wt%, 특수굴격을 갖는 에폭시 수지로서 테트라페닐올에탄(tetraphenylolthane)형 에폭시 수지(유카셀에폭시사제 에피코트 1031S)를 23.1wt% 포함하는 것을 주성분으로 하고, 경화제로서 비스페놀A형의 볼락(volac) 수지(유카셀에폭시사제 YLH129865)와, 경화촉진제로서 이미다졸(imidazole) 화합물(시코쿠가세미고교사(Sikoku Corporation)제 2E4MZ)를 가한 것을 톨루엔 및 메틸에틸케톤(methyl ethyl ketone)으로 용해시켰다. 이것에 페라이트 단결정 입자를 첨가하고, 볼밀로부터 분산, 혼합하였다.

이와 같이 하여 얻어진 제 3 슬러리를 글래스클로스(glass cloth)에 도포하고, 반경화 상태의 프리프레그(prepreg)를 작성하여, 기판의 원재료로 하였다. 프리프레그를 반경화 상태로 하기 까지의 열처리 조건으로서 100 $^{\circ}C$ 에서 2시간 가열하였다. 또한, 글래스클로스는 H글래스, E글래스, Q글래스 등, 특히 한정되지 않고, 요구특성에 따라 구분하여 사용하면 좋지만, 금화는 E글래스를 사용하였다. 또한, 글래스의 두께에 대해서도 요구에 따라 적당히 소망하는 두께의 것을 사용하면 좋고, 금화는 두께 100 μ m의 것을 사용하였다. 얻어진 반경화 상태의 프리프레그를, 소정 매수 감치고, 가압, 가열에 의해 약 0.4mm 두께의 복합자성체로 하였다. 이 복합자성체료를 토로이드 형상으로 가공하여 기판을 얻었다. 이 기판의 투과율의 주파수 특성을 측정하였다. 결과를 도 10에 나타낸다.

(비교예 2)

산화철(Fe_2O_3) 분말, 산화니켈(NiO) 분말 및 산화아연(ZnO) 분말을 45:3:47:1:7.6의 몰비에서 청량한 것에 물을 가하여 볼밀에서 12시간 혼합함으로써 슬러리(이하, 제 1 슬러리)를 얻었다. 또한, 혼합에 앞서서 분산제(동아합성사제 A-30SL)를 분말의 중량에 대하여 1%의 비율로 첨가하였다.

제 1 슬러리를 분무건조기에서 건조, 과립화를 하였다.

얻어진 과립분을 1000 $^{\circ}C$ 의 온도에서 1시간 소성함으로써 복합산화물 소결체를 얻었다. 이 소결체를 볼밀에서 12시간 분쇄함으로써 평균입자직경 3 μ m의 분말을 얻었다. 이 분말에 대해서 실시예 4와 마찬가지로

자기특성을 측정하였다. 그 결과를 표 1 및 도 9에 나타낸다.

얻어진 분말을 사용한 점을 제외하고 실시예 4의 마찬가지로 하여 복합자성재료를 제작하여 투자율의 주파수 특성을 측정하였다. 결과를 도 10에 나타낸다.

【표 1】

	1차자속밀도 $B_H(G)$	보상 $H(Hz)$
실시예 4	5126	0.025
비교예 2	2978	0.129

(실시예 4 및 비교예 2에 있어서 측정된 자기특성)

표 1에 나타내는 바와 같이 실시예 4에서 얻어진 페라이트 분말은 비교예 2에서 얻어진 분말보다도 포화 자속밀도가 향상하고 있는 것을 알 수 있다. 또한, 도 8 및 도 9는 실시예 4 및 비교예 2에서 얻어진 분말의 히스테리시스 곡선을 나타내는데, 실시예 4와 비교예 2의 결과를 비교하면, 실시예 4에서는 히스테리시스 손실이 저감되고, 자성 페라이트 재료로서 저손실의 것임이 확인되었다. 또한, 도 10에 나타내는 바와 같이 실시예 4와 비교예 2에서의 투자율의 주파수 특성을 비교하면, 실시예 4에 의한 복합자성재료 쪽이 100MHz를 초과하는 영역까지 20% 정도 높은 값을 나타내고 있는 것이 확인되었다.

(실시예 5)

먼저, 산화마그네슘(MgO) 분말, 산화티탄(TiO_2) 분말을 각각 1:1의 몰비에서 칭량한 것에 물을 가하여 분말에서 12시간 혼합함으로써 슬러리(제 1 슬러리)를 얻었다. 또한, 혼합시, 분산제(동아합성사제 A-30SL)를 분말의 총중량에 대하여 1%의 비율로 첨가하였다.

이 제 1 슬러리를 분무건조기에서 건조, 과립화를 하고, 복합산화물 과립을 얻었다. 이 때의 분무건조 조건은 특히 한정되는 것은 아니지만, 과립직경이 대략 $200\mu m$ 이하로 되도록 조건을 설정하는 것이 좋다.

이 과립을 $1250^\circ C$ 의 온도에서 1시간 소성함으로써 복합산화물을 반응·소결시켰다. 그 후, 이 복합산화물에 물 및 분산제(동아합성사제 A-30SL)를 가하고, 재차 분말에서 48시간 분쇄하여, 평균입자직경 $0.5\mu m$ 의 미세분말로 구성되는 슬러리(제 2 슬러리)를 제작하였다. 이 제 2 슬러리에 10wt% 농도로 희석시킨 PVAc(폴리비닐알콜) 용액을 분말의 총중량에 대하여 2wt% 농도로 첨가하고, 또한 제 2 슬러리 중의 분말이 중량비로 40wt%로 되도록 조정을 하였다.

제 2 슬러리에 분무건조법을 적용하여 과립분을 작성하였다. 사용한 분무건조기는 후지사키전기(주)제의 MDL-0500이고, 4류체 방식의 노즐을 사용하고, 송액량을 $40cc/min$, 노즐 에어량을 $160NL/min$, 급기온도를 $190^\circ C$ 의 조건으로 하였다. 얻어진 과립분의 평균입자직경은 $9.7\mu m$ 이다.

다음에 상기에 의해 얻어진 과립분을 질소와 산소의 혼합 가스를 캐리어 가스로 하여, $1600^\circ C$ 로 가열된 세라믹스관 중에 공급하였다. 또한, 캐리어 가스 유량에 의해 생성 분말의 체류시간이 1~10초 정도로 되도록 조절하였다.

세라믹스관을 통과한 분말에 대해서 형광 X선 분석장치를 사용한 X선 회절의 결과로부터 티탄산마그네슘이 단상인 것이 확인되었다. 또한, 얻어진 티탄산마그네슘 분말을 SEM으로 관찰한 바, 이 분말에는 응집이 없는 것을 확인하였다. 또한, 각 분말은 입자직경 $0.1\sim 10\mu m$ 정도로 거의 완전한 구형상에 가까운 입자로 이루어져 있고, 평균입자직경은 약 $1.5\mu m$, 구형도는 약 1인 것을 확인하였다. 개개의 입자를 상세하게 관찰하면, 입자 표면 전체에 걸쳐서 대정성을 갖는 결정면의 파셋트가 보이고, 입자내에 입자재를 포함하지 않는 단결정 입자인 것이 판명되었다.

상기 단결정 분말과 소성 온도가 떨어진 글래스 재료(일본전기화학제 $MgO \cdot B_2O_3 \cdot SiO_2$ 계 글래스 GA-60; 평균입자직경: $0.15\mu m$)을 상기 단결정 분말이 65 체적%로 되도록 칭량하고, 톨루엔과 에탄올의 혼합용매 중에 폴리비닐부티랄(세키스이가가쿠교(주)(Sekisui Chemical Co., Ltd)제 메슬렉BH-3)을 용해시킨 슬러리에 혼합하고, 유전체 슬러리를 제작하였다.

혼합시에는 불말을 사용하고, 균일한 혼합 분산이 가능하도록 하였다.

이것을 닥터 블레이드(Doctor Blade)법으로 $200\mu m$ 두께의 그린 시트(green sheet)로 성형하였다. 그 후, 두께 약 $1300\mu m$ 으로 되도록 그린 시트를 적출하고, $900^\circ C$ 에서 2시간 유지하는 조건으로 소성을 하고, 소결체를 얻었다. 그리고, 이 소결체로부터 길이 8mm, 폭 1mm, 두께 1mm의 스틱형상의 시료를 작성하여, 유전율 및 품질계수 $Q(=1/\tan \delta)$ 를 측정하였다. 또한, 비교예 3으로서 상기 글래스 재료만을 $900^\circ C$ 에서 2시간 유지하는 조건으로 소성한 소결체의 특성을 측정하였다. 결과를 표 2에 나타낸다.

실시예 5는 $900^\circ C$ 라고 하는 저온 소성에 있어서도 글래스 단체에 비해 Q가 큰 복합재료가 얻어지는 것을 시사하고 있다. 또한, 실시예 5는 단결정의 티탄산마그네슘 분말을 이용하기 때문에 소성 과정에 있어서 티탄산마그네슘 분말과 글래스의 반응이 표면만으로 억제되고, 티탄산마그네슘이 갖는 Q의 저감을 최소한으로 할 수 있는 것으로 이해된다. 그 결과로서 Q가 높은 복합재료가 실현된다.

표 2

	비	비
실시예5	6.2	458
비교예3	5.1	281

단결정 두께 수 20μm

(실시예 6)

실시예 4에서 얻어진 단결정 페라이트 분말을 준비하였다. 한편, 산화철(Fe_2O_3), 산화니켈(NiO), 산화붕소(B_2O_3) 및 산화아연(ZnO)이 45.3:47.1:5.0:7.6의 몰비로 이루어지는 고체상반응법(소결법)에 의한 평균입자직경 0.07μm의 다결정 페라이트 분말을 준비하였다. 단결정 페라이트 분말 및 다결정 페라이트 분말을 상기 단결정 페라이트 분말이 65 체적%로 되도록 칭량하고, 혼합하였다. 이 혼합 분말을 토로이드형상으로 성형한 후, 900℃의 온도에서 1시간 유지함으로써 소결체를 얻었다. 인덕턴스값 LOI 1μH로 되도록 이 소결체에 대하여 권선을 실시하여 평가용의 시료를 얻었다. 이 시료에 대해서 직류충전특성을 평가하였다. 비교예 4로서 상기 다결정 페라이트 분말 만으로 이루어지는 소결체에 대해서도 동일한 평가를 하였다. 결과를 도 13(실시예 6) 및 도 14(비교예 4)에 나타내는데, 단결정 페라이트 분말과 다결정 페라이트 분말을 혼합한 실시예 6은 인덕턴스값 LOI의 변화가 작고, 높은 전류까지의 사용이 가능하다는 것을 확인하였다.

발명의 효과

이상 설명한 바와 같이 본 발명에 따르면 구형상, 또한 단결정의 단결정 세라믹스 분말을 얻을 수 있다.

(5) 청구의 범위

청구항 1

세라믹스 성분으로 이루어지는 분체를 캐리어 가스와 함께 가열처리 영역에 공급하는 분체 공급 공정과, 상기 가열처리 영역에 공급된 상기 분체를 해당 분체의 용점 이상으로 가열하는 가열처리 공정과, 상기 가열처리 공정에서 얻어진 생성물을 냉각함으로써 단결정 세라믹스 분말을 얻는 냉각 공정을 구비하는 것을 특징으로 하는 단결정 세라믹스 분말의 제조방법.

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 단결정 세라믹스 분말은 0.9μm 이상의 구형도를 구비하는 것을 특징으로 하는 단결정 세라믹스 분말의 제조방법.

청구항 3

제 1 항에 있어서,

상기 가열처리 공정에서는 상기 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체를 용융시켜 용융물을 형성하고 있는 것을 특징으로 하는 단결정 세라믹스 분말의 제조방법.

청구항 4

제 3 항에 있어서,

상기 가열처리 공정은 전기관형상으로 중에서 행해지는 것을 특징으로 하는 단결정 세라믹스 분말의 제조방법.

청구항 5

제 1 항에 있어서,

상기 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체는 50μm 이하의 입자로 형성되어 있는 것을 특징으로 하는 단결정 세라믹스 분말의 제조방법.

청구항 6

제 1 항에 있어서,

상기 세라믹스 성분으로 이루어지는 분체는 평균입자직경이 1μm 이하인 1차 입자로 형성된 과립인 것을 특징으로 하는 단결정 세라믹스 분말의 제조방법.

청구항 7

세라믹스 성분으로 이루어지는 분체를 부유시키면서 기열로 층을 이동시키고, 얻어진 생성물을 냉각함으로써 구형도가 0.9 이상의 단결정 세라믹스 분말을 얻는 것을 특징으로 하는 단결정 세라믹스 분말의 제조방법.

청구항 8

평균입자직경이 0.1~30 μm 이고, 또한 0.9 이상의 구형도를 구비하는 것을 특징으로 하는 단결정 세라믹스 분말.

청구항 9

제 8 항에 있어서,

상기 단결정 세라믹스 분말이 산화를 자성체 재료로 구성되는 것을 특징으로 하는 단결정 세라믹스 분말.

청구항 10

제 8 항에 있어서,

상기 단결정 세라믹스 분말이 산화를 유전체 재료로 구성되는 것을 특징으로 하는 단결정 세라믹스 분말.

청구항 11

제 8 항에 있어서,

상기 단결정 세라믹스 분말의 평균입자직경이 1~20 μm 인 것을 특징으로 하는 단결정 세라믹스 분말.

청구항 12

자성체 재료 또는 유전체 재료로 이루어지는 단결정 구형상 산화물 분말과, 상기 구형상 산화물 분말을 분산, 유지하는 결합재로 이루어지는 복합재료에 있어서,

상기 단결정 구형상 산화물 분말은 평균입자직경이 0.1~30 μm , 0.9 이상의 구형도를 구비하는 것을 특징으로 하는 복합재료.

청구항 13

제 12 항에 있어서,

상기 결합재가 수지로 구성되는 것을 특징으로 하는 복합재료.

청구항 14

제 13 항에 있어서,

상기 구형상 산화물 분말은 30~98wt%의 범위로 함유하는 것을 특징으로 하는 복합재료.

청구항 15

제 12 항에 있어서,

상기 구형상 산화물 분말이 유전체 재료로 구성되고, 상기 결합재가 상기 구형상 산화물 분말을 구성하는 유전체 재료보다도 저용점의 유전체 재료로 구성되는 것을 특징으로 하는 복합재료.

청구항 16

제 12 항에 있어서,

상기 구형상 산화물 분말의 양이 30~70 체적%인 것을 특징으로 하는 복합재료.

청구항 17

제 12 항에 있어서,

상기 구형상 산화물 분말이 자성체 재료로 구성되고, 상기 복합재가 상기 구형상 산화물 분말을 구성하는 자성체 재료보다도 저용점의 자성체 재료로 구성되는 것을 특징으로 하는 복합재료.

청구항 18

제 17 항에 있어서,

상기 구형상 산화물 분말의 양이 30~70 체적%인 것을 특징으로 하는 복합재료.

청구항 19

유전체층 중에 내부 금속전극이 배치된 전자부품에 있어서,

상기 유전체층이 유전체 재료로 이루어지는 단결정 구형상 산화물 분말과, 상기 구형상 산화물 분말을 분산, 유지하는 결합재로 이루어지는 복합 재료로 이루어지고, 상기 구형상 산화물 분말은 평균입자직경 0.1~30 μm , 0.9 이상의 구형도를 구비하는 것을 특징으로 하는 전자부품.

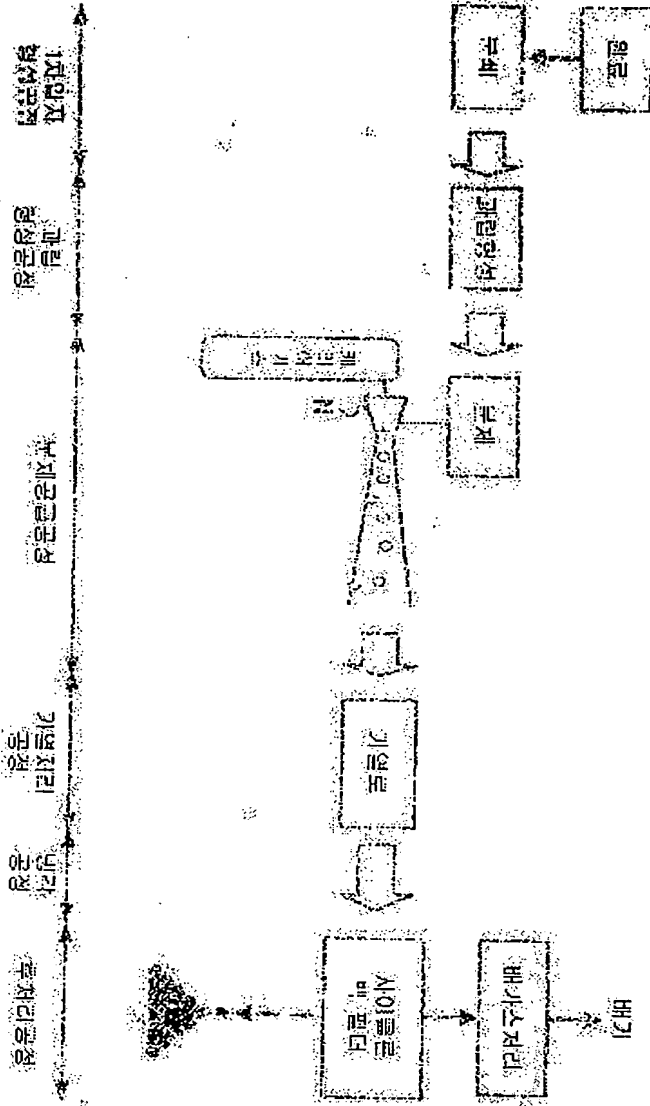
청구항 20

자성체를 통해 내부 금속전극이 배치된 전자부품에 있어서,

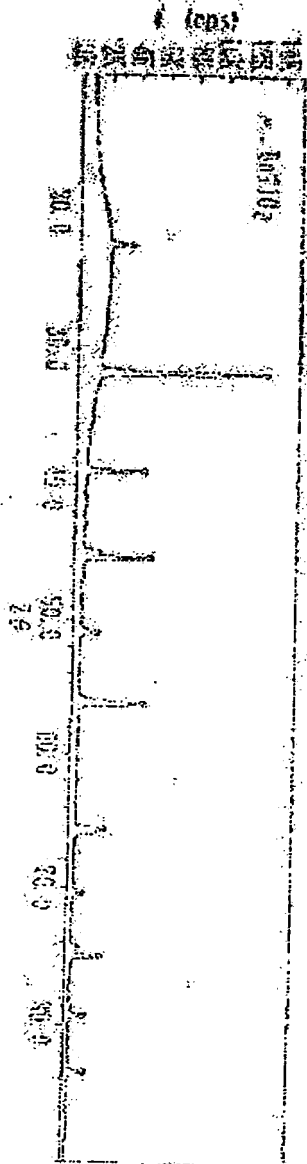
상기 자성체층이 자성체 재료로 이루어지는 단결정 구형상 산화물 분말과, 상기 구형상 산화물 분말을 분산 유지하는 결합재로 이루어지는 복합재료로 이루어지고, 상기 구형상 산화물 분말은 평균입자직경이 0.1~30 μ m, 0.9 미만의 구형도를 구비하는 것을 특징으로 하는 전자부품.

도 1

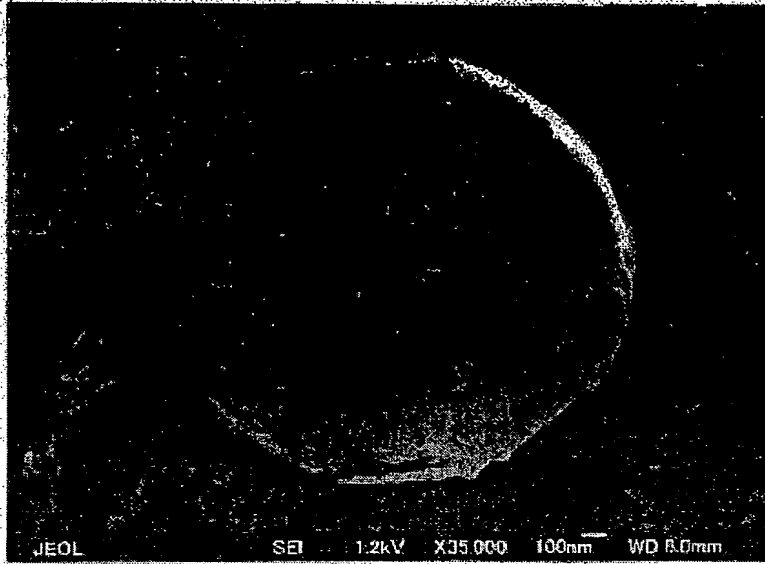
103



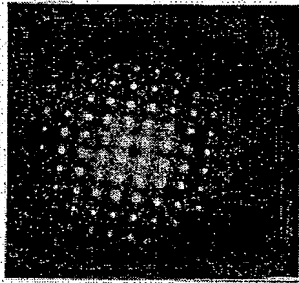
002



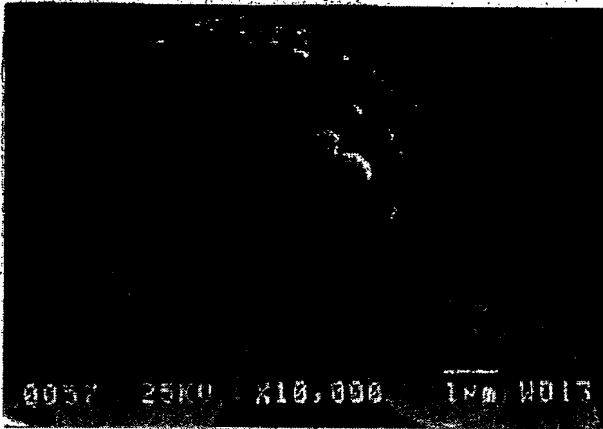
EB3



EB4



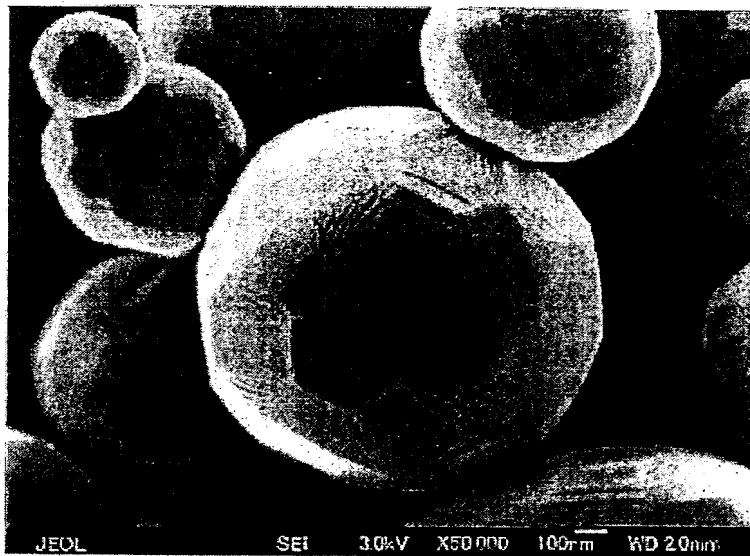
SEM



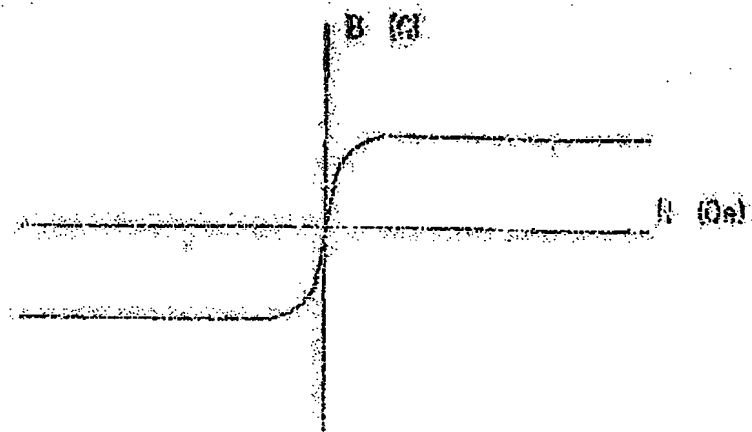
SEM



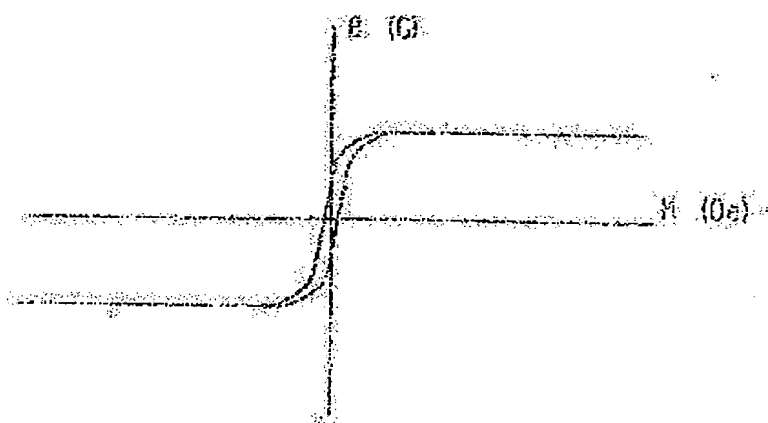
SEM



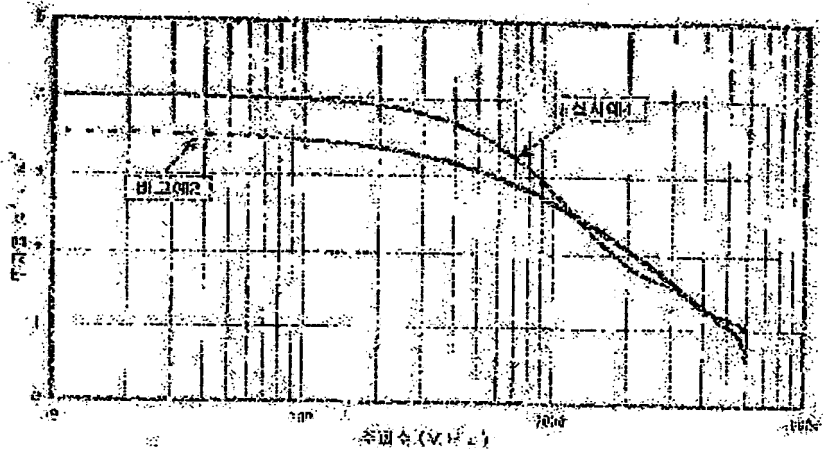
500



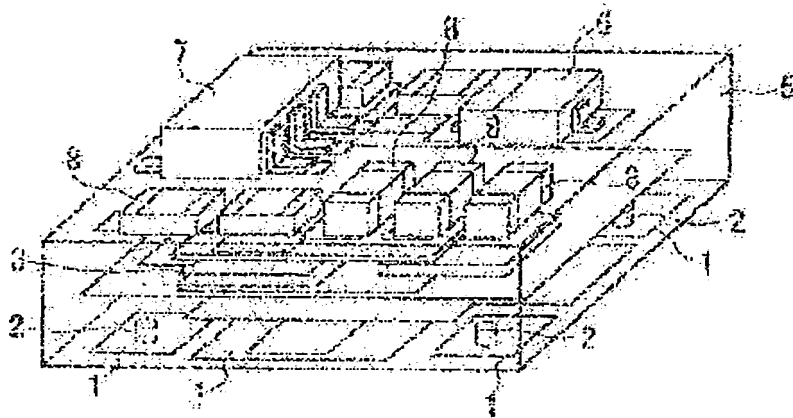
500



도면 10



도면 11



도면 12

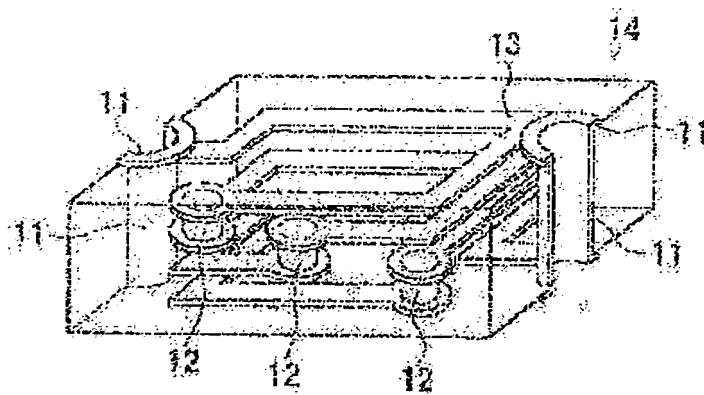


도표 13

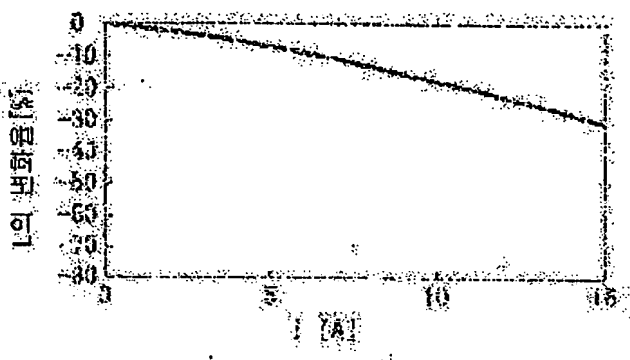
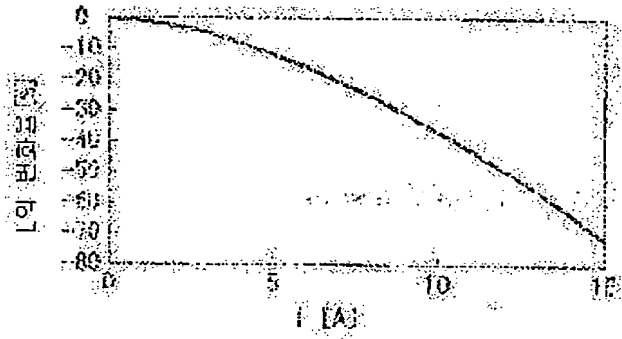


도표 14



THIS PAGE BLANK (USPTO)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKewed/SLANTED IMAGES**
- ☒ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)